

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-096048

(43)Date of publication of application : 04.04.2000

(51)Int.Cl.

C09K 11/79

C09K 11/08

(21)Application number : 10-303151

(71)Applicant : KASEI OPTONIX CO LTD

(22)Date of filing : 18.09.1998

(72)Inventor : KYO INSAN
IGNATIUS ULETTO LENGORO
OKUYAMA KIKUO
BOKU SHOHIN**(54) PRODUCTION OF TERBIUM-ACTIVATED YTTRIUM SILICATE FLUORESCENT SUBSTANCE****(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for producing a terbium-activated fluorescent substance of a rare earth silicic acid salt, having narrow particle size distribution, hardly including agglomerate thereof, having a highly pure, uniform and homogeneous chemical composition, capable of forming a compact highly luminescent fluorescent film, and manifesting excellent luminescent characteristics.

SOLUTION: This method for producing the terbium-activated yttrium silicate fluorescent substance comprises a step for forming an aqueous solution containing terbium, silicon and yttrium, introducing the liquid drop comprising the aqueous solution into a thermally decomposing reactor with a carrier gas, and heating the obtained mixture to heat the mixture only for a retention time of 1 sec to 10 min at 1050-1700° C, or a step for introducing the liquid drop into the thermally decomposing reactor with the carrier gas and heating the obtained mixture to heat only for the retention time of 1 sec to 10 min at 600-1050° C, and a step for additionally reheating the obtained product for 1 sec to 24 hr at 1050-1350° C.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-96048
(P2000-96048A)

(43) 公開日 平成12年4月4日 (2000. 4. 4)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード (参考)
C 0 9 K 11/79 11/08	C P R	C 0 9 K 11/79 11/08	4 H 0 0 1 B

審査請求 未請求 請求項の数10 書面 (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平10-303151

(22) 出願日 平成10年9月18日 (1998. 9. 18)

(71) 出願人 390019976

化成オプトニクス株式会社
神奈川県小田原市成田1060番地

(72) 発明者 姜 允賛

大韓民国 済州道 南済州郡 安徳面 創
川理14-2

(72) 発明者 イグナティウス ウレット レンゴロ

広島県東広島市西条西本町28-6 サンス
クエア東広島720

(72) 発明者 奥山 喜久夫

大阪府河内長野市美加の台2-21-15

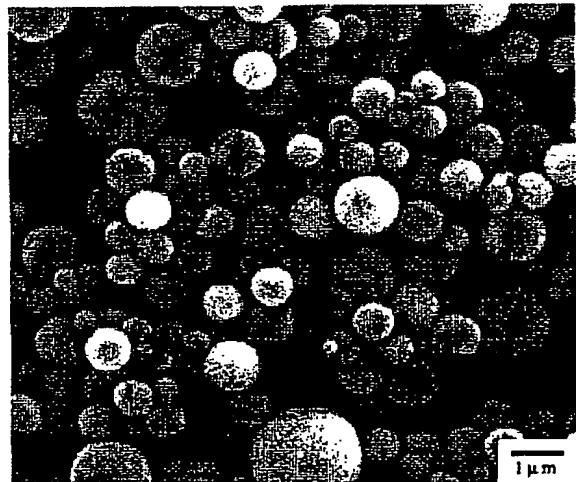
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 テルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 粒度分布が狭く、凝集粒子が少なく、高純度で化学組成が均一均質であって、緻密な高輝度蛍光膜を形成することが可能な、優れた発光特性を示すテルビウム付活希土類珪酸塩蛍光体を製造する方法を提供する。

【構成】 テルビウム、珪素、イットリウムを含有する水溶液を作成し、該水溶液からなる液滴をキャリアーガスにより熱分解反応炉内に導入して1050~1700℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程、または、キャリアーガスによりこの液滴を熱分解反応炉内に導入して600~1050℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程の後、更にこれを1050~1350℃の範囲内の温度で1秒間以上24時間以下の範囲内の時間だけ再加熱する工程からなることを特徴とするテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 イットリウム（Y）、珪素（Si）及びテルビウム（Tb）を含有する水溶液を作成し、該水溶液からなる液滴をキャリアガスにより熱分解反応炉内に導入して1050～1700℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程からなることを特徴とするテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項2】 上記熱分解反応炉内での上記加熱温度が1050～1350℃の範囲内の温度であることを特徴とする請求項1に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項3】 イットリウム（Y）、珪素（Si）及びテルビウム（Tb）を含有する水溶液を作成し、該水溶液からなる液滴をキャリアガスにより熱分解反応炉内に導入して600～950℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程の後、更に1050～1350℃の範囲内の温度で1秒間以上24時間以下の範囲内の時間だけ再加熱する工程からなることを特徴とするテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項4】 上記テルビウム（Tb）、珪素（Si）及びイットリウム（Y）を供給する原料として、それぞれ硝酸テルビウム、テトラエチルオルソシリケート及び硝酸イットリウムを用いることを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項5】 上記水溶液を作成する際の上記イットリウム（Y）と珪素（Si）とテルビウム（Tb）との混合比が、 $1.8 \leq (M_y + M_t) / M_s \leq 2.2$ 及び $0.005 \leq M_t / (M_y + M_t) \leq 0.1$ で表す範囲内であることを特徴とする請求項1～4のいずれか一項に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。{ここで、 M_y 、 M_t 及び M_s は、それぞれ、イットリウム（Y）、テルビウム（Tb）および珪素（Si）のモル数を示す。}

【請求項6】 上記イットリウム（Y）とテルビウムとの混合比が、 $0.02 \leq M_t / (M_y + M_t) \leq 0.06$ で表す範囲内であることを特徴とする請求項5に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項7】 上記水溶液内の上記イットリウム（Y）と珪素（Si）とテルビウム（Tb）との溶質濃度Cが、 $0.05 \leq C \leq 5$ の範囲内であることを特徴とする請求項1～6のいずれか一項に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。{ここで、Cは、水溶液1リットルに含有されるイットリウム（Y）、珪素（Si）及びテルビウム（Tb）の合計のモル数の1/3である。}

【請求項8】 上記水溶液を液滴状にする工程が超音波を利用する噴霧方法であることを特徴とする請求項1～

7のいずれか一項に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項9】 上記キャリアガスとして酸化性ガスを使用することを特徴とする請求項1～8請求項1～7のいずれか一項に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【請求項10】 上記キャリアガスとして空気を使用することを特徴とする請求項9に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、陰極線管、蛍光ランプ、プラズマディスプレイパネル（PDP）、及びフィールドエミッションディスプレイ（FED）などに用いることが可能なテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 陰極線管、蛍光ランプ、PDP、FEDなどに用いられる複合酸化物蛍光体は、従来、原料粉末を混合したものを坩堝などの焼成容器に入れた後、高温で長時間加熱することにより固相反応を起こさせ、それをボールミルなどで微粉砕することにより製造されてきた。

【0003】 しかし、この方法で製造された蛍光体は不規則形状粒子が凝集した粉末からなっており、この蛍光体を上記用途に使用した場合には、塗布して得られる蛍光膜が不均質で充填密度の低いものとなるために発光特性が低かった。また、固相反応後のボールミルなどによる微粉砕処理中に蛍光体に物理的及び化学的な衝撃が加えられるために、粒子内や表面に欠陥が発生して発光強度が低下するという不都合があった。さらには、坩堝などの焼成容器に入れて高温で長時間加熱するために、坩堝からの不純物の混入による発光特性の低下が起こることや、原料粉末の粒度によっては固相反応が十分に進行せずに不純物相が混在して発光特性の低下を招くことがあった。また、高温で長時間加熱する際の消費エネルギーが大きいために、蛍光体の製造コストを高くしていた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、上記の問題点を解決するためになされたものであり、粒度分布が狭く、凝集粒子が少なく、球状であるために、陰極線管、蛍光ランプ、PDP、FEDなどに用いる際に均質で緻密な高輝度蛍光膜を形成することが可能であり、しかも、高純度で化学組成が均一であるために発光特性の優れたテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体を安価に製造する方法を提供する。

【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明は

(1) イットリウム（Y）、珪素（Si）及びテルビウ

ム(Tb)を含有する水溶液を作成し、該水溶液からなる液滴をキャリアガスにより熱分解反応炉内に導入して1050~1700℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程からなることを特徴とするテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

(2) 上記熱分解反応炉内での上記加熱温度が1050~1350℃の範囲内の温度であることを特徴とする上記(1)に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【0006】(3) イットリウム(Y)、珪素(Si)及びテルビウム(Tb)を含有する水溶液を作成し、該水溶液からなる液滴をキャリアガスにより熱分解反応炉内に導入して600~950℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程の後、更に1050~1350℃の範囲内の温度で1秒間以上24時間以下の範囲内の時間だけ再加熱する工程からなることを特徴とするテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

(4) 上記テルビウム(Tb)、珪素(Si)及びイットリウム(Y)を供給する原料として、硝酸テルビウム、テトラエチルオルソシリケート及び硝酸イットリウムをそれぞれ用いることを特徴とする上記(1)~

(3)のいずれかに記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【0007】(5) 上記水溶液を作成する際の上記イットリウム(Y)と珪素(Si)とテルビウム(Tb)との混合比が、 $1.8 \leq (My + Mt) / Ms \leq 2.2$ 及び $0.005 \leq Mt / (My + Mt) \leq 0.1$ で表す範囲内であることを特徴とする上記(1)~(4)のいずれかに記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。{ここで、My、Mt及びMsは、それぞれ、イットリウム(Y)、テルビウム(Tb)および珪素(Si)のモル数を示す。}

(6) 上記イットリウム(Y)とテルビウムとの混合比が、 $0.02 \leq Mt / (My + Mt) \leq 0.06$ で表す範囲内であることを特徴とする上記(5)に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【0008】(7) 上記水溶液内の上記イットリウム(Y)と珪素(Si)とテルビウム(Tb)との溶質濃度Cが、 $0.05 \leq C \leq 5$ の範囲内であることを特徴とする上記(1)~(6)のいずれかに記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。{ここで、Cは、水溶液1リットルに含有されるイットリウム(Y)、珪素(Si)及びテルビウム(Tb)の合計のモル数の1/3である。}

(8) 上記水溶液を液滴状にする工程が超音波を利用する噴霧方法であることを特徴とする上記(1)~(7)のいずれかに記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【0009】(9) 上記キャリアガスとして酸化性ガスを使用することを特徴とする上記(1)~(8)のいずれかに記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

(10) 上記キャリアガスとして空気を使用することを特徴とする上記(9)に記載のテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造方法。

【0010】

【発明の実施の形態】以下、本発明を更に詳細に説明する。本発明の蛍光体の製造方法において、少なくともイットリウム(Y)、珪素(Si)及びテルビウム(Tb)を含有する水溶液を作成するために用いられる原料は、これらの元素を含有する塩や有機金属化合物など、水に可溶であり、しかも、酸化性雰囲気中で高温に加熱した際に酸化物に分解反応する原料ならば、いずれのものでも使用することができる。しかし、蛍光体の合成を容易にするためには、硝酸テルビウムやテトラエチルオルソシリケートや硝酸イットリウムなど加熱により容易に分解する原料が好ましい。また、良好な発光特性を得るためには、キラーセンターとなる鉄やニッケルなどの不純物元素の少ない原料が好ましい。

【0011】水溶液を作成する際のYとSiとTbの混合比を、 $1.8 \leq (My + Mt) / Ms \leq 2.2$ 及び $0.005 \leq Mt / (My + Mt) \leq 0.1$ で表す範囲内にすると、良い発光特性の蛍光体を得られる。ここで、My、Mt及びMsは、それぞれY、Si及びTbのモル数を示す。また、 $0.02 \leq Mt / (My + Mt) \leq 0.06$ とした場合には、さらに良い発光特性を示す蛍光体を得られる。

【0012】これらの原料を水に投入して攪拌して十分に溶解する。溶液内の上記各元素濃度は、所望の蛍光体粒子の直径に対する超音波噴霧等により形成される液滴の直径に従って調整される。すなわち、蛍光体粒子直径に対する液滴直径の比が大きければ、溶液内の溶質濃度を低くし、その比が小さければ溶質濃度を高く調整する。良好な蛍光体を合成するためには、水溶液内のY、Si及びTbの溶質濃度Cが、 $0.05 \leq C \leq 5$ の範囲内であることが好ましい。ここで、Cは、水溶液1リットルに含有されるY、Si及びTbの合計のモル数の1/3である。

【0013】水溶液中に少量のフラックスを添加すると熱分解反応時に比較的低温度で短時間に結晶性の高い蛍光体球状粒子が生成するので、予めフラックスを水溶液中に溶解しておいても良い。

【0014】液滴の形成は、様々な噴霧方法により実施可能である。例えば、加圧空気で液体を吸い上げながら噴霧して1~50μmの液滴を形成する方法、圧電結晶からの2MHz程度の超音波を利用して4~10μmの液滴を形成する方法、穴径が10~20μmのオリフィス振動子により振動し、そこへ一定の速度で供給され

5

ている液体が振動数に応じて一定量ずつ穴から放出され 5~50 μm の液滴を形成する方法、回転している円板上に液を一定速度で落下させて遠心力によってその液から 20~100 μm の液滴を形成する方法、液体表面に高い電圧を引加して 0.5~10 μm の液滴を発生する方法などが採用できる。陰極線管、蛍光ランプ、PDP、FEDなどに用いることが可能なサブミクロンからミクロンオーダーの粒径の揃ったテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体の製造には、液滴径の比較的均一な 4~10 μm の液滴を形成できる超音波を利用する噴霧方法が好ましい。

【0015】形成した液滴は、キャリアガスにより熱分解反応炉内に導入されて加熱されることにより蛍光体粒子となる。溶液の種類、キャリアガスの種類、キャリアガス流量、熱分解反応炉内の温度など加熱速度に影響を与える因子により、中空の球、ポーラス、中の詰まった粒子、破碎された粒子などと生成する粒子の形態及び表面状態が変化する。キャリアガスとしては、空気、酸素、少量の酸素を含む窒素やアルゴンなどが使用できるが、良好な発光特性を得るためには、空気や酸素などの酸化性ガスが好ましい。製造コストを下げるためには、空気がより好ましい。

【0016】熱分解反応は、1050℃~1700℃の範囲内の温度で行われる。熱分解反応温度が低すぎると、結晶性が低い上に Tb が結晶内に付活されないために、発光特性が低くなる。一方、熱分解反応温度が高すぎると、不要なエネルギーを消費する。また、高温での熱分解反応は、色純度の悪い結晶相の析出を招くため、1050℃~1350℃の範囲内の温度がより好ましい。

【0017】熱分解反応は、1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間で行うのが好ましい。反応時間が短すぎると、結晶性が低い上に Tb が結晶内に付活されないために、発光特性が低くなる。一方、反応時間が長すぎると、不要なエネルギーを消費する。

【0018】熱分解に際しては、先ず、比較的低温で熱分解反応を行って所望の化学組成の球状前駆体粒子を得た後に、更に比較的高温でこれを再加熱処理しても良く、このように2段階に分けて焼成を行い、その粒子の結晶性を高めると同時に Tb を結晶内に付活することで発光特性の良好な球状蛍光体を得ることができる。この目的のために、キャリアガスにより液滴を熱分解反応炉内に導入して 600℃~1050℃の範囲内の温度で1秒間以上10分間以下の範囲内の滞留時間だけ加熱する工程の後、更に 1050~1350℃の範囲内の温度で1秒間以上24時間以下の範囲内の時間だけ再加熱処理する方が、発光特性の良好な球状蛍光体を得る上ではより好ましい。この時、再加熱の温度が低すぎるとまたは時間が短すぎると、結晶性が低い上に Tb が結晶内に付活されないために、発光特性が低くなる。一方、温度

6

が高すぎるか時間が長すぎると凝集粒子が多数生成するために、蛍光膜を形成する際に緻密にならず、所望の発光特性が得られない。また、温度が高すぎると望ましくない発光を示す結晶相の割合が増加して、所望の発光特性が得られない。

【0019】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に詳細に説明する。

(実施例1) 蛍光体の化学組成が $(\text{Y}_{0.96}\text{Tb}_{0.04})_2\text{SiO}_5$ となるように硝酸イットリウム、テトラエチルオルソシリケート及び硝酸テルビウムをそれぞれ水に溶解し、少量の硝酸を添加して溶質濃度 C が 0.45 の均質な溶液を作成した。この液を 1.7 MHz の振動子を有する超音波噴霧器に入れて液滴を形成し、空気をキャリアガスとして使用して 1200℃ の温度に保持した管状炉内にこの液滴を導入して 5 秒間熱分解反応を行い蛍光体を得た。得られた蛍光体に Cu K α 線を照射して粉末 X 線回折パターンを調べたところ、良好な結晶性を示した。また、この粒子の形状は、図 1 の走査型電子顕微鏡写真に示すように表面が滑らかで粒径の揃った球状であり、その平均粒径は 1.1 μm だった。この蛍光体について 254 nm 紫外線照射下での発光スペクトルを測定したところ、波長 538 nm に観察される主発光ピークの発光強度が 918 となり、良好な緑色発光を示すことが分かった。

【0020】(実施例2) 熱分解反応温度を 1100℃ に変更した以外は実施例 1 と同一の条件で蛍光体を合成した。得られた蛍光体は、良好な結晶性を示した。また、この粒子の形状は、粒径の揃った球状であり、その平均粒径は 1.1 μm だった。この蛍光体について実施例 1 と同一の条件で 254 nm 紫外線照射下での発光スペクトルを測定したところ、波長 538 nm に観察される主発光ピークの発光強度が 810 となり、良好な緑色発光を示すことが分かった。

【0021】(実施例3) 蛍光体の化学組成が $(\text{Y}_{0.96}\text{Tb}_{0.04})_2\text{SiO}_5$ となるようにテトラエチルオルソシリケート、硝酸イットリウムおよび硝酸テルビウムを水に溶解し、少量の硝酸を添加して溶質濃度 C が 0.45 の均質な溶液を作成した。この液を 1.7 MHz の振動子の超音波噴霧器に入れて液滴を形成し、空気をキャリアガスとして使用して 900℃ の最高温度に保持した管状炉内にこの液滴を導入して 4 秒間熱分解反応を行い、前駆体粒子を合成した。この粒子をマッフル炉中に静置して大気中にて 1200℃ で 5 時間再加熱して蛍光体を得た。得られた蛍光体の粉末 X 線回折パターンを調べたところ図 2 の (1) に示すように良好な結晶性を示した。また、この粒子の形状は、図 3 の走査型電子顕微鏡写真に示すように粒径の揃った球状であり、その平均粒径は 1.1 μm だった。この蛍光体について実施例 1 と同一の条件で 254 nm 紫外線照射下で

の発光スペクトルを測定したところ、波長538nmに観察される主発光ピークの発光強度が965となり良好な緑色発光を示すことが分かった。

【0022】（比較例1）熱分解反応温度を900℃に変更した以外は実施例1と同一の条件で蛍光体を合成した。得られた蛍光体は、粒径の揃った球状であるものの、結晶性が低かった。この蛍光体について実施例1と同一の条件で254nm紫外線照射下での発光スペクトルを測定したところ、波長538nmに観察される主発光ピークの発光強度が425と低かった。

【0023】（比較例2）熱分解反応温度を800℃に変更した以外は実施例1と同一の条件で蛍光体を合成した。得られた蛍光体は、粒径の揃った球状であるものの、結晶性が低かった。この蛍光体について実施例1と同一の条件で254nm紫外線照射下での発光スペクトルを測定したところ、波長538nmに観察される主発光ピークの発光強度が37と低かった。

【0024】（比較例3）再加熱温度を900℃に変更した以外は実施例3と同一の条件で蛍光体を合成した。得られた蛍光体は、粒径の揃った球状であるものの、図2の（2）に示すように、結晶性が低かった。この蛍光体について実施例1と同一の条件で254nm紫外線照射下での発光スペクトルを測定したところ、波長538

nmに観察される主発光ピークの発光強度が326と低かった。

【0025】（比較例4）再加熱温度を1400℃に変更した以外は実施例3と同一の条件で蛍光体を合成した。得られた蛍光体の粉末X線回折パターンを調べたところ図2の（3）に示すように実施例3とは異なる結晶相が生成していた。また、この粒子の形状は、図4の走査型電子顕微鏡写真に示すように、粒子同士が強く融着した状態だった。

10 【0026】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明によれば、粒度分布が狭く、凝集粒子が少なく、球状であるために、陰極線管、蛍光ランプ、PDP、FEDなどに用いる際に均質で緻密な高輝度蛍光膜を形成することが可能であり、しかも、高純度で化学組成が均一であるために発光特性の優れたテルビウム付活珪酸イットリウム蛍光体を安価に製造する方法を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

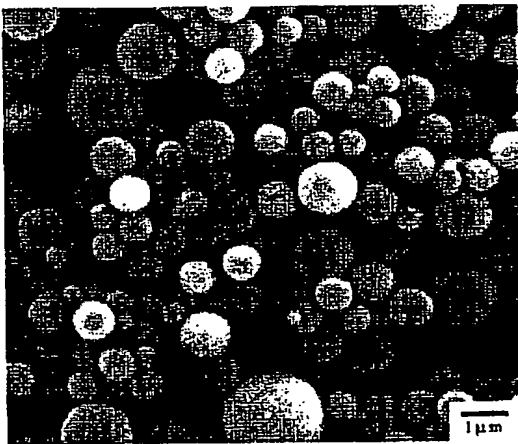
【図1】実施例1の蛍光体の走査型電子顕微鏡写真

20 【図2】実施例3、比較例3、比較例4の蛍光体の粉末X線回折パターン

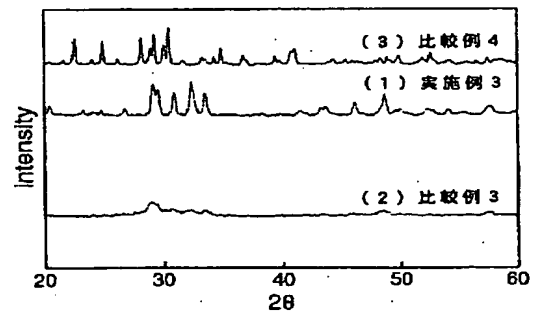
【図3】実施例3の蛍光体の走査型電子顕微鏡写真

【図4】比較例4の蛍光体の走査型電子顕微鏡写真

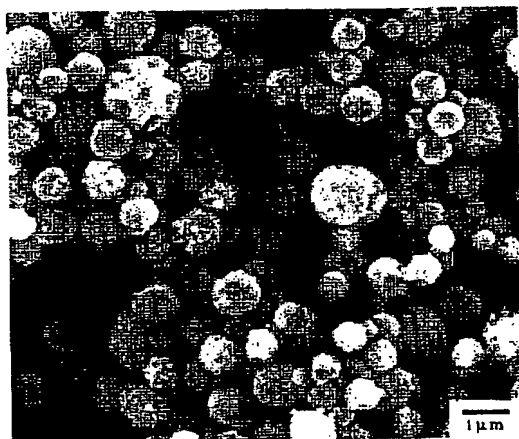
【図1】



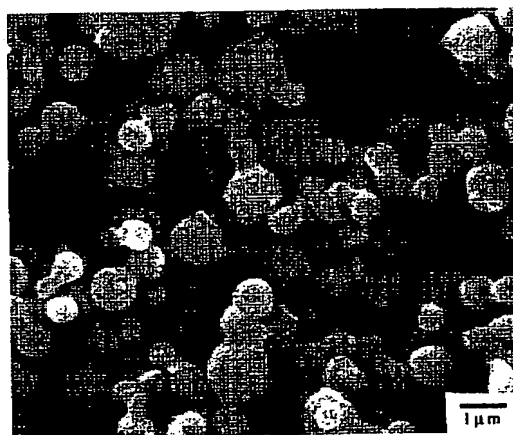
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(72)発明者 朴 勝彬
大韓民国 大田市 儒城区 新星洞 ハン
ウル アパト 107-701

Fターム(参考) 4H001 CF01 XA08 XA14 XA39 YA65

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)